

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-294117

(43)Date of publication of application : 04.11.1998

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 09-101436

(71)Applicant : FUJI ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 18.04.1997

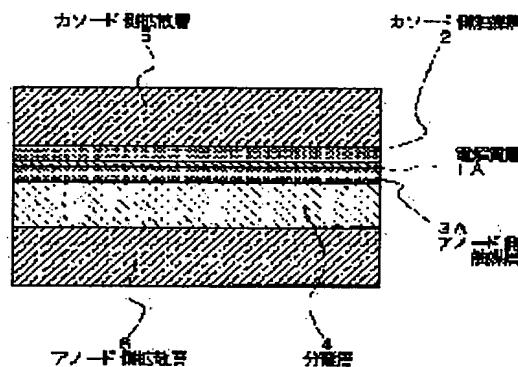
(72)Inventor : ENAMI YOSHIKI

(54) SOLID HIGH-MOLECULAR ELECTROLYTE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To stabilize operation at low cost by suppressing poisoning of a catalyst bed caused by CO₂ and CO, and by facilitating control of moisture in an electrolyte layer by means of a simple structure.

SOLUTION: On each of both principal surfaces of a thin film electrolyte layer 1A, a cathode side catalyst layer 2 and an anode side catalyst layer 3A, both of which are made of carbon powder carrying platinum, are placed. In addition, on the outside surface of the anode side catalyst layer 3A, a separation layer 4 composed of a palladium metal thin film is placed. Thereafter a cathode diffusion layer 5 and an anode diffusion layer 6 are placed on the outside surfaces of them, respectively; thus, a film electrode complex has been so structured that only hydrogen can be selected properly out of a fuel gas through it and delivered to the anode side catalyst layer 3A.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or

application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

JPO and NCIP are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] The membrane electrode complex which allotted the catalyst bed to both the principal planes of the electrolyte layer which consists of solid-state polyelectrolyte film, and allotted and formed the conductive gaseous diffusion layer in the external surface further Insert with the separator of gas impermeability, constitute a unit cell, and conduction of the fuel gas which contains hydrogen in the gas passageway which countered the anode side catalyst bed and was allotted to the gas passageway countered and allotted to the cathode side catalyst bed in oxidant gas again is carried out. The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell characterized by having the gas detached core which penetrates hydrogen alternatively in the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell generated according to electrochemical reaction between the gas passageways which carry out conduction of the fuel gas to an anode side catalyst bed.

[Claim 2] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell according to claim 1 with which the aforementioned gas detached core is characterized by consisting of palladium or a palladium alloy.

[Claim 3] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell according to claim 1 characterized by the aforementioned gas detached core consisting of a porosity carbon sheet filled up with any one of the Pori polyethylene, polystyrene, polyimide, cellulose acetate, and vinyl fluoride in pore.

[Claim 4] The solid-state polyelectrolyte mold fuel cell according to claim 1 with which the aforementioned gas detached core is characterized by the pitch diameter of pore consisting of porous membrane 1 micrometer or less.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates especially to the configuration of the anode polar zone with respect to the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell which uses the solid-state polyelectrolyte film as an electrolyte layer.

[0002]

[Description of the Prior Art] Drawing 5 is the decomposition perspective view showing the basic configuration of the unit cell of the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell used conventionally. The anode side catalyst bed which is not illustrated by the principal plane of another side in the cathode side catalyst bed 2 again is joined to one principal plane of the electrolyte layer 1 which consists of solid-state polyelectrolyte film, a membrane electrode zygote is formed in it, it inserts into it further with the cathode side diffusion layer 5 equipped with conductivity for this membrane electrode zygote, the anode side diffusion layer 6, and the separators 7 and 8 which consist of a gas impermeable ingredient equipped with reactant gas passage, and the unit cell is constituted. In addition, although not shown in this Fig., it has the outside of a separator in order to hold the temperature of a cell uniformly, and may have the cooling section inside. Moreover, in drawing, although separators 7 and 8 are equipped with reactant gas passage, the cathode side diffusion layer 5 and the anode side diffusion layer 6 may be equipped with reactant gas passage, and separators 7 and 8 may be made into the thin gauge structure without a slot. In addition, in a solid-state polyelectrolyte mold fuel cell, since the property will fall to the degree of pole if the solid-state polyelectrolyte film dries, reactant gas is humidified and supplied till the dew point near the temperature of a cell.

[0003] Drawing 6 is the sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of drawing 5. The solid-state polyelectrolyte film used for the electrolyte layer 1 is thickness. 20-200 It is mum and perphloro carbon sulfonic acid film (Du Pont Nafion etc.) is most often used. the cathode side catalyst bed 2 -- generally -- It is 5-50 micrometers in thickness, and polytetrafluoroethylene is mixed for the catalyst which supported platinum to carbon powder, and water repellence is given. It is CO₂ in the fuel gas supplied although formed almost similarly [the anode side catalyst bed 3]. When CO is contained, in order to prevent poisoning of a catalyst, the catalyst of a Pt-Ru system is used. Since the cathode side diffusion layer 5 and the anode side diffusion layer 6 need to be equipped with conductivity and gaseous diffusion nature, the porosity material of metals, such as porosity material of carbon, and titanium, stainless steel, is used. Standard thickness 100-500 Although it is mum, in equipping these diffusion layers with the function of a gas passageway, it becomes the thickness of 1mm or more in many cases.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] A lot of COs₂ in the obtained fuel gas which is generally used as fuel gas and which carried out steam reforming CO is contained, and in order to prevent poisoning of a catalyst to the anode side catalyst bed 3, the catalyst of a Pt-Ru system is used. however, the catalyst of this Pt-Ru system -- also setting -- the concentration of CO -- about -- It is required to be below 100 ppm, in order to prevent poisoning, a refiner is built into the preceding paragraph of a fuel cell, and usually reduces and uses CO concentration of fuel gas below for a predetermined value. For this reason, it is necessary to equip dedication with the equipment for poisoning prevention of the catalyst like the above, and there is a difficulty that cost becomes high, in the conventional solid-state polyelectrolyte mold fuel cell.

[0005] On the other hand, in the unit cell of the configuration of drawing 5 , as for electrolyte resistance of the electrolyte layer 1, since it is proportional to thickness, as long as it has gas impermeability, the cell property of the thinner one of thickness improves. Moreover, although each of oxidant gas supplied to a cathode side as mentioned above and fuel gas supplied to an anode side is humidified and it is supplied, if the thickness of the electrolyte layer 1 is thin, since the diffusion by the side of the anode of the water generated by the cathode side according to electrochemical reaction will become easy, with the water diffused even if it supplied the low fuel gas of a dew-point, the rise of electrolyte resistance is suppressed and ion conductivity is maintained. Namely, the more the thickness of the electrolyte layer 1 is thin, management of the moisture of the electrolyte layer 1 becomes easy, and, the more the temperature requirement which can be operated also spreads.

[0006] However, the electrolyte layer 1 will be joined by the pressure of the oxidant gas and fuel gas with which each of the cathode side diffusion layer 5, anode side diffusion layers 6 and cathode side catalyst beds 2, and anode catalyst beds was sent to the reactant gas passage of separators 7 and 8 since gas permeability was large in the configuration of drawing 5 . If the obtained fuel gas which the capacity of oxidant gas became abundant when using air as oxidant gas especially, and carried out steam reforming is used, it will be about 30% of CO₂. Since it contains, the capacity of fuel gas becomes abundant and becomes great [the pressure which joins the electrolyte layer 1]. When it becomes the situation which a hole opens to the electrolyte layer 1 with this pressure, there is a possibility of producing the gas leakage between poles and causing damage on a cel. Therefore, in the electrolyte layer 1 using the solid-state polyelectrolyte film which the electrolyte layer 1 needs to be equipped with the thickness holding mechanical strength sufficient for a long period of time so that gas leakage between poles may not be produced, and makes a fluorine system polymer a subject, about 20 micrometers is the minimum thickness by the film which knit about 50 micrometers and splicing yarn by homogeneous membrane.

[0007] For this reason, in the configuration of the conventional unit cell, since the diffusion which thin film-ization of the electrolyte layer 1 is restricted and minds the electrolyte layer 1 of generation water is suppressed, it is necessary to humidify reactant gas so much and to supply it, and there is a trouble that management of moisture becomes complicated. The purpose of this invention cancels the difficulty of the conventional technique like the above, and is CO₂. Poisoning of the catalyst bed by CO is effectively controlled by the easy configuration, management of the moisture of an electrolyte layer becomes easy by thin film-ization of an electrolyte layer further, and cost is cheap and is to offer the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell which is stabilized over a long period of time and can be operated.

[0008]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned purpose, it sets to this invention. The membrane electrode complex which allotted the catalyst bed to both

the principal planes of the electrolyte layer which consists of solid-state polyelectrolyte film, and allotted and formed the conductive gaseous diffusion layer in the external surface further Insert with the separator of gas impermeability, constitute a unit cell, and conduction of the fuel gas which contains hydrogen in the gas passageway which countered the anode side catalyst bed and was allotted to the gas passageway countered and allotted to the cathode side catalyst bed in oxidant gas again is carried out. In the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell generated according to electrochemical reaction The gas detached core which consists of a gas detached core which penetrates hydrogen alternatively between the gas passageways which carry out conduction of the fuel gas to an anode side catalyst bed, for example, palladium, and a palladium alloy, Or the gas detached core which consists of a porosity carbon sheet filled up with any one of the Pori polyethylene, polystyrene, polyimide, cellulose acetate, and vinyl fluoride in pore, Or suppose that it has the gas detached core which the pitch diameter of pore becomes from porous membrane 1 micrometer or less.

[0009] If constituted like the above, when conduction of the fuel gas will be carried out to the gas passageway countered and allotted to the anode side catalyst bed, hydrogen is set to the gas detached core penetrated alternatively, and the hydrogen in fuel gas is components 2 other than hydrogen, for example, CO. It will sort out more nearly alternatively than CO, a gas detached core will be penetrated, and it will reach to an anode side catalyst bed. Therefore, an anode side catalyst bed is CO₂. Since it is not put to CO, there is no poisoning by these gas and the stable property will be maintained.

[0010] Moreover, since gas permeability is inevitably lower than a gaseous diffusion layer, even if a hole opens the gas detached core which penetrates hydrogen alternatively to an electrolyte layer, the amount of gas transparency will be stopped low and other electrode sections will be maintained by the condition which can be generated. Therefore, it becomes possible to make thickness of an electrolyte layer very thinner than before. Since diffusion through the electrolyte layer of generation water will arise easily if an electrolyte layer is made thin, even if it stops the amount of humidification of reactant gas, it becomes easy to hold an electrolyte layer humid, therefore management of moisture becomes easy.

[0011]

[Embodiment of the Invention]

<Example 1> drawing 1 is the sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 1 of this invention. The perphloro carbon sulfonic-acid film of 10 micrometers in thickness and a thin film is used for electrolyte layer 1A. The carbon powder catalyst which supported platinum with a thickness of 20 micrometers is used for the cathode side catalyst bed 2 and the anode side catalyst bed 3 by each. A detached core 4 consists of a palladium metal thin film with a thickness of 50 micrometers, and plays the role which penetrates alternatively the hydrogen in the fuel gas which carries out conduction to the gas passageway by the side of an anode, and is penetrated to anode side catalyst bed 3A. Moreover, to the cathode side diffusion layer 5 and the anode side diffusion layer 6, thickness all The porosity carbon sheet which is 200 micrometers is used.

[0012] CO₂ contained in fuel gas since it has the detached core 4 which consists of a palladium metal thin film with this configuration. The transparency to anode side catalyst bed 3A of CO is controlled, and poisoning is avoided. Moreover, since thin film-ization of electrolyte layer 1A will be attained by having had the detached core 4 and the generation water accompanying a generating mode can be easily spread through electrolyte layer 1A, even if it stops the amount of humidification of reactant gas, it becomes easy to hold electrolyte layer 1A humid.

[0013] In addition, although the palladium metal thin film is used for the detached core 4 in this example, similarly, it may have conductivity and a detached core 4 may be formed using the palladium alloy thin film which penetrates hydrogen alternatively.

<Example 2> drawing 2 is the sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 2 of this invention.

[0014] The difference with the example 1 of this example is in the point of having detached core 4A formed so that it might have the property which is equipped with conductivity and penetrates hydrogen alternatively, by being in the configuration of a detached core and being filled up with the polyethylene of the polymeric materials which equipped the part by the side of electrolyte layer 1A of the anode side diffusion layer 6 which consists of a porosity carbon sheet equipped with conductivity with the property which penetrates hydrogen alternatively. Therefore, it sets to this example as well as an example 1, and is CO₂. Poisoning of anode side catalyst bed 3A by CO is avoided, and thin film-ization of electrolyte layer 1A is attained, and it becomes easy to hold electrolyte layer 1A humid.

[0015] In addition, the same effectiveness is acquired, even if it fills up a porosity carbon sheet with polymeric materials, such as the Pori equipped with property which penetrates hydrogen alternatively similarly besides polyethylene used in this example polystyrene, polyimide, cellulose acetate, vinyl, etc. fluoride, and forms a detached core.

<Example 3> drawing 3 is the sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 3 of this invention.

[0016] For the description of this configuration, an average pore diameter is abbreviation. It is in having detached core 4B which consists of porosity carbon material which is 0.1 micrometers. The hydrogen content child with a very short mean free path is long CO₂ of a mean free path, although it is about easy to diffuse an average pore diameter with about 1 micrometer or less through pore among the components of the fuel gas supplied to the anode side when very small. Being spread becomes difficult [CO]. That is, the hydrogen in fuel gas will be alternatively sorted out by detached core 4B of this configuration, and it will reach to anode catalyst bed 3A, and is CO₂ of anode catalyst bed 3A. Poisoning by CO will be avoided and thin film-ization of electrolyte layer 1A will be realized. In addition, with this configuration, detached core 4B serves as the function of the anode side diffusion layer 6 of the conventional example, and it does not have the diffusion layer of dedication.

[0017] <Example 4> drawing 4 is the sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 4 of this invention. This configuration shows the configuration incorporating detached core 4C which consists of an ingredient with a small

hydrogen permeation multiplier. Since the hydrogen permeation multiplier is small, in order to secure the predetermined amount of hydrogen, detached core 4C is formed in the film. For this reason, since the mechanical strength of detached core 4C is low, the electrolyte layer 1 is formed from the thick film like the conventional example. Therefore, it sets in this configuration and is CO₂ of the electrolyte layer 1. Poisoning by CO is avoided.

[0018]

[Effect of the Invention] As mentioned above, a catalyst bed is allotted to both the principal planes of the electrolyte layer which consists of solid-state polyelectrolyte film in this invention. The membrane electrode complex which furthermore allotted and formed the conductive gaseous diffusion layer in the external surface Insert with the separator of gas impermeability, constitute a unit cell, and conduction of the fuel gas which contains hydrogen in the gas passageway which countered the anode side catalyst bed and was allotted to the gas passageway countered and allotted to the cathode side catalyst bed in oxidant gas again is carried out. In the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell generated according to electrochemical reaction The gas detached core which consists of a gas detached core which penetrates hydrogen alternatively between the gas passageways which carry out conduction of the fuel gas to an anode side catalyst bed, for example, palladium, and a palladium alloy, Or the gas detached core which consists of a porosity carbon sheet filled up with any one of the Pori polyethylene, polystyrene, polyimide, cellulose acetate, and vinyl fluoride in pore, Or since it has the gas detached core which the pitch diameter of pore becomes from porous membrane 1 micrometer or less Poisoning of the catalyst bed by CO₂ or CO will be effectively controlled by the easy configuration, management of the moisture of an electrolyte layer becomes easy by thin film-ization of an electrolyte layer further, and the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell which cost is cheap, is stabilized over a long period of time, and can operate will be obtained.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] The sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 1 of this invention

[Drawing 2] The sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 2 of this invention

[Drawing 3] The sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 3 of this invention

[Drawing 4] The sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell of the example 4 of this invention

[Drawing 5] The decomposition perspective view showing the basic configuration of the unit cell of the solid-state polyelectrolyte mold fuel cell used conventionally

[Drawing 6] The sectional view showing the configuration of the polar zone of the unit cell

of the conventional example of drawing 5

[Description of Notations]

1 Electrolyte Layer

1A Electrolyte layer

2 Cathode Side Catalyst Bed

3 Anode Side Catalyst Bed

3A Anode side catalyst bed

4 Detached Core

4A Detached core

4B Detached core

4C Detached core

5 Cathode Side Diffusion Layer

6 Anode Side Diffusion Layer

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-294117

(43)公開日 平成10年(1998)11月4日

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	F I		
H 0 1 M 8/02		H 0 1 M 8/02	Z	
			R	
8/10		8/10		
審査請求 未請求 請求項の数4 O L (全 5 頁)				

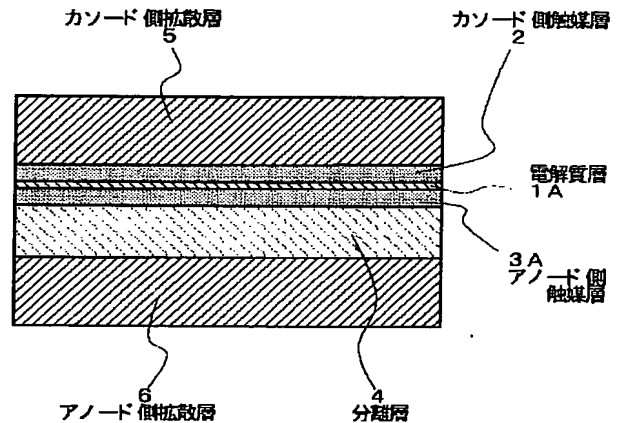
(21)出願番号	特願平9-101436	(71)出願人	000005234 富士電機株式会社 神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号
(22)出願日	平成9年(1997)4月18日	(72)発明者	榎並 義晶 神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号 富士電機株式会社内
		(74)代理人	弁理士 篠部 正治

(54)【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池

(57)【要約】

【課題】簡単な構成によりCO₂やCOによる触媒層の被毒を抑制し、さらに電解質層の水分の管理を容易にして、コストが安く、安定して運転できるものにする。

【解決手段】薄膜の電解質層1Aの両主面に白金を担持したカーボン粉末よりなるカソード側触媒層2とアノード側触媒層3Aとを配し、アノード側触媒層3Aの外面にパラジウム金属薄膜からなる分離層4を配したのち、さらにその外側に多孔質カーボンシートよりなるカソード側拡散層5とアノード側拡散層6を配して、膜電極複合体を構成し、燃料ガス中の水素のみを選択的に選別してアノード側触媒層3Aへと送る。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 固体高分子電解質膜よりなる電解質層の両主面に触媒層を配し、さらにその外面に導電性のガス拡散層を配して形成した膜電極複合体を、ガス不透過性のセパレータで挟んで単位セルを構成し、カソード側触媒層に対向して配されたガス流路に酸化剤ガスを、またアノード側触媒層に対向して配されたガス流路に水素を含む燃料ガスを通流して、電気化学反応により発電する固体高分子電解質型燃料電池において、アノード側触媒層と燃料ガスを通流するガス流路との間に、水素を選択的に透過するガス分離層を備えたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 2】 前記のガス分離層が、パラジウム、またはパラジウム合金よりなることを特徴とする請求項 1 に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 3】 前記のガス分離層が、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリイミド、酢酸セルロースおよびポリフッ化ビニルのうちのいずれか一つを細孔内に充填した多孔質カーボンシートよりなることを特徴とする請求項 1 に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 4】 前記のガス分離層が、細孔の平均径が 1 μ m 以下の多孔質膜よりなることを特徴とする請求項 1 に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、固体高分子電解質膜を電解質層として用いる固体高分子電解質型燃料電池に係わり、特にアノード電極部の構成に関する。

【0002】

【従来の技術】 図 5 は、従来より用いられている固体高分子電解質型燃料電池の単位セルの基本構成を示す分解斜視図である。固体高分子電解質膜よりなる電解質層 1 の一方の主面にカソード側触媒層 2 を、また他方の主面に図示されていないアノード側触媒層を接合して、膜電極接合体を形成し、さらにこの膜電極接合体を、導電性を備えたカソード側拡散層 5 とアノード側拡散層 6、ならびに反応ガス流路を備えたガス不透過性材料よりなるセパレータ 7、8 で挟んで、単位セルが構成されている。なお、本図には示されていないが、セルの温度を一定に保持するためにセパレータの外側、あるいは内側に冷却部を備える場合もある。また、図においては、セパレータ 7、8 に反応ガス流路を備えているが、カソード側拡散層 5 とアノード側拡散層 6 に反応ガス流路を備えて、セパレータ 7、8 は溝なしの薄板構造とする場合もある。なお、固体高分子電解質型燃料電池では、固体高分子電解質膜が乾燥するとその特性が極度に低下するので、反応ガスをセルの温度に近い露点まで加湿して供給する。

【0003】 図 6 は、図 5 の単位セルの電極部の構成を示す断面図である。電解質層 1 に用いる固体高分子電解

質膜は、厚さ 20 ~ 200 μ m で、パーフロロカーボンスルホン酸膜（デュボン社製 Nafion など）が最もよく使用されている。カソード側触媒層 2 は、概して 5 ~ 50 μ m の厚さで、白金をカーボン粉末に担持した触媒にポリテトラフルオロエチレンを混合して撥水性を持たせている。アノード側触媒層 3 もほぼ同様に形成されるが、供給される燃料ガス中に CO_2 や CO が含まれる場合には、触媒の被毒を防止するために Pt-Ru 系の触媒が使用される。カソード側拡散層 5 とアノード側拡散層 6 は、導電性とガス拡散性を備える必要があるため、カーボンの多孔質材や、チタン、ステンレス鋼等の金属の多孔質材が用いられる。標準的な厚さは 100 ~ 500 μ m であるが、これらの拡散層にガス流路の機能を備える場合には 1 mm 以上の厚さになることが多い。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 燃料ガスとして一般に用いられる水蒸気改質して得た燃料ガス中には、多量の CO_2 や CO が含まれており、アノード側触媒層 3 には触媒の被毒を防止するために Pt-Ru 系の触媒が用いられている。しかしながら、この Pt-Ru 系の触媒においても、 CO の濃度が凡そ 100 ppm 以下であることが必要であり被毒を防止するため、燃料電池の前端に精製装置を組み込んで燃料ガスの CO 濃度を所定値以下に低減して用いるのが通例である。このため、従来の固体高分子電解質型燃料電池においては、上記のごとき触媒の被毒防止用の装置を専用に備える必要があり、コストが高くなるという難点がある。

【0005】 一方、図 5 の構成の単位セルにおいて、電解質層 1 の電解質抵抗は膜厚に比例するので、ガス不透過性を備えているかぎり、膜厚の薄い方が電池特性が向上する。また、前述のようにカソード側に供給される酸化剤ガス、アノード側に供給される燃料ガスはいずれも加湿して供給されるが、電解質層 1 の膜厚が薄ければ、電気化学反応によりカソード側で生成した水のアノード側への拡散が容易となるので、露点の低い燃料ガスを供給しても拡散した水によって電解質抵抗の上昇が抑えられ、イオン導電性が維持される。すなわち、電解質層 1 の膜厚が薄ければ薄いほど、電解質層 1 の水分の管理が容易となり、運転可能な温度範囲も広がる。

【0006】 しかしながら、図 5 の構成において、カソード側拡散層 5 とアノード側拡散層 6 およびカソード側触媒層 2 とアノード触媒層はいずれもガス透過性が大きいため、セパレータ 7、8 の反応ガス流路に送られた酸化剤ガスと燃料ガスの圧力が電解質層 1 に加わることで、特に、酸化剤ガスとして空気をいれれば、酸化剤ガスのガス量は多量となり、また、水蒸気改質して得た燃料ガスをいれれば、約 30 % の CO_2 を含むので燃料ガスのガス量は多量となり、電解質層 1 に加わる圧力も多大となる。この圧力によって電解質層 1 に孔が開く事態となると、極間のガス漏れを生じてセルの損傷を引き

起こす恐れがある。したがって、電解質層 1 は、極間のガス漏れを生じないよう長期間十分な機械的強度を保持する膜厚を備える必要があり、フッ素系ポリマーを主体とする固体高分子電解質膜を用いる電解質層 1 においては、均質膜で約 $50\mu\text{m}$ 、補強糸を編み込んだ膜で約 $20\mu\text{m}$ が、最小限の膜厚である。

【0007】このため、従来の単位セルの構成においては、電解質層 1 の薄膜化が制限され、生成水の電解質層 1 を介しての拡散が抑えられるので、反応ガスを多量に加湿して供給する必要があり、水分の管理が複雑になるという問題点がある。本発明の目的は、上記のごとき従来技術の難点を解消し、 CO_2 や CO による触媒層の被毒が簡単な構成により効果的に抑制され、さらには電解質層の薄膜化により電解質層の水分の管理が容易となり、コストが安く、長期にわたり安定して運転できる固体高分子電解質型燃料電池を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するために、本発明においては、固体高分子電解質膜よりなる電解質層の両主面に触媒層を配し、さらにその外面に導電性のガス拡散層を配して形成した膜電極複合体を、ガス不透過性のセパレータで挟んで単位セルを構成し、カソード側触媒層に対向して配されたガス流路に酸化剤ガスを、またアノード側触媒層に対向して配されたガス流路に水素を含む燃料ガスを流通して、電気化学反応により発電する固体高分子電解質型燃料電池において、アノード側触媒層と燃料ガスを流通するガス流路との間に、水素を選択的に透過するガス分離層、例えば、パラジウムまたはパラジウム合金よりなるガス分離層、あるいは、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリイミド、酢酸セルロースおよびポリフッ化ビニルのうちのいずれか一つを細孔内に充填した多孔質カーボンシートよりなるガス分離層、あるいは、細孔の平均径が $1\mu\text{m}$ 以下の多孔質膜よりなるガス分離層を備えることとする。

【0009】上記のごとく構成すれば、アノード側触媒層に対向して配されたガス流路に燃料ガスを流通すると、水素を選択的に透過するガス分離層において、燃料ガス中の水素が、水素以外の成分、例えば CO_2 や CO より選択的に選別されて、ガス分離層を透過してアノード側触媒層へと達することとなる。したがって、アノード側触媒層は CO_2 や CO に曝されることがないので、これらのガスによる被毒がなく、安定した特性を持続することとなる。

【0010】また、水素を選択的に透過するガス分離層は必然的にガス拡散層よりガス透過性が低いので、仮に電解質層に孔が開いてもガス透過量が低く抑えられ、他の電極部分は発電可能な状態に維持される。したがって、電解質層の厚さを従来より極めて薄くすることが可能となる。電解質層を薄くすれば生成水の電解質層を介しての拡散が容易に生じるので、反応ガスの加湿量を抑

えても電解質層を湿潤に保持することが容易となり、したがって水分の管理が容易となる。

【0011】

【発明の実施の形態】

＜実施例 1＞図 1 は、本発明の実施例 1 の単位セルの電極部の構成を示す断面図である。電解質層 1 A には、厚さ $10\mu\text{m}$ と薄膜のパーフロロカーボンスルホン酸膜が使用されている。カソード側触媒層 2 とアノード側触媒層 3 には、いずれも、厚さ $20\mu\text{m}$ の、白金を担持したカーボン粉末触媒が用いられている。分離層 4 は、厚さ $50\mu\text{m}$ のパラジウム金属薄膜からなり、アノード側のガス流路に流通する燃料ガス中の水素を選択的に透過してアノード側触媒層 3 A へと透過する役割を果たすものである。また、カソード側拡散層 5 とアノード側拡散層 6 には、いずれも厚さが $200\mu\text{m}$ の多孔質カーボンシートが用いられている。

【0012】本構成では、パラジウム金属薄膜からなる分離層 4 が備えられているので、燃料ガス中に含まれる CO_2 や CO のアノード側触媒層 3 A への透過が抑制され、被毒が回避される。また、分離層 4 を備えたことにより、電解質層 1 A の薄膜化が可能となり、発電運転に伴う生成水が電解質層 1 A を介して容易に拡散できることとなるので、反応ガスの加湿量を抑えても電解質層 1 A を湿潤に保持することが容易となる。

【0013】なお、本実施例では分離層 4 にパラジウム金属薄膜を用いているが、同様に、導電性を備え、水素を選択的に透過するパラジウム合金薄膜を用いて分離層 4 を形成してもよい。

＜実施例 2＞図 2 は、本発明の実施例 2 の単位セルの電極部の構成を示す断面図である。

【0014】本実施例の実施例 1 との相違点は分離層の構成にあり、導電性を備える多孔質カーボンシートからなるアノード側拡散層 6 の電解質層 1 A 側の部分に、水素を選択的に透過する特性を備えた高分子材料のポリエチレンを充填することにより、導電性を備え、かつ水素を選択的に透過する特性を備えるよう形成された分離層 4 A が備えられている点にある。したがって、本実施例においても、実施例 1 と同様に、 CO_2 や CO によるアノード側触媒層 3 A の被毒が回避され、また、電解質層 1 A の薄膜化が可能となり、電解質層 1 A を湿潤に保持することが容易となる。

【0015】なお、本実施例において用いているポリエチレンのほか、同様に水素を選択的に透過する特性を備えるポリスチレン、ポリイミド、酢酸セルロースおよびポリフッ化ビニル等の高分子材料を多孔質カーボンシートに充填して分離層を形成しても同様の効果が得られる。

＜実施例 3＞図 3 は、本発明の実施例 3 の単位セルの電極部の構成を示す断面図である。

【0016】本構成の特徴は、平均細孔径が約 $0.1\mu\text{m}$

の多孔質カーボン材よりなる分離層4Bが備えられていることにある。平均細孔径がおおよそ約1 μ m以下と微少であれば、アノード側に供給された燃料ガスの成分のうち平均自由行程が極めて短い水素分子は細孔を通して拡散し易いが、平均自由行程の長いCO₂やCOは拡散が困難となる。すなわち、本構成の分離層4Bにより燃料ガス中の水素が選択的に選別されてアノード触媒層3Aへ到達することとなり、アノード触媒層3AのCO₂やCOによる被毒は回避され、また、電解質層1Aの薄膜化が実現されることとなる。なお、本構成では、分離層4Bが従来例のアノード側拡散層6の機能を兼ねており、専用の拡散層は備えていない。

【0017】＜実施例4＞図4は、本発明の実施例4の単位セルの電極部の構成を示す断面図である。本構成は、水素透過係数の小さい材料よりなる分離層4Cを組み込んだ構成を示すものである。水素透過係数が小さいので、所定の水素量を確保するために分離層4Cは薄い層に形成されている。このため分離層4Cの機械的強度は低いので、電解質層1は従来例のように厚い膜より形成されている。したがって、本構成においては、電解質層1のCO₂やCOによる被毒が回避される。

【0018】

【発明の効果】上述のように、本発明においては、固体高分子電解質膜よりなる電解質層の両主面に触媒層を配し、さらにその外面に導電性のガス拡散層を配して形成した膜電極複合体を、ガス不透過性のセパレータで挟んで単位セルを構成し、カソード側触媒層に対向して配されたガス流路に酸化剤ガスを、またアノード側触媒層に対向して配されたガス流路に水素を含む燃料ガスを通流して、電気化学反応により発電する固体高分子電解質型燃料電池において、アノード側触媒層と燃料ガスを通流するガス流路との間に、水素を選択的に透過するガス分離層、例えば、パラジウムまたはパラジウム合金よりなるガス分離層、あるいは、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリイミド、酢酸セルロースおよびポリフッ化ビニ

ルのうちのいずれか一つを細孔内に充填した多孔質カーボンシートよりなるガス分離層、あるいは、細孔の平均径が1 μ m以下の多孔質膜よりなるガス分離層を備えることとしたので、簡単な構成によりCO₂やCOによる触媒層の被毒が効果的に抑制されることとなり、さらには電解質層の薄膜化により電解質層の水分の管理が容易となり、コストが安く、長期にわたり安定して運転できる固体高分子電解質型燃料電池が得られることとなった。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例1の単位セルの電極部の構成を示す断面図

【図2】本発明の実施例2の単位セルの電極部の構成を示す断面図

【図3】本発明の実施例3の単位セルの電極部の構成を示す断面図

【図4】本発明の実施例4の単位セルの電極部の構成を示す断面図

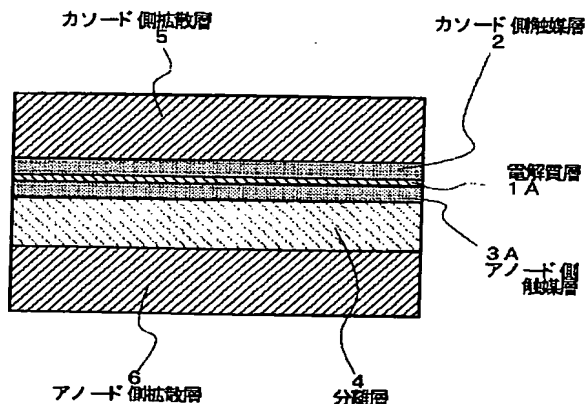
【図5】従来より用いられている固体高分子電解質型燃料電池の単位セルの基本構成を示す分解斜視図

【図6】図5の従来例の単位セルの電極部の構成を示す断面図

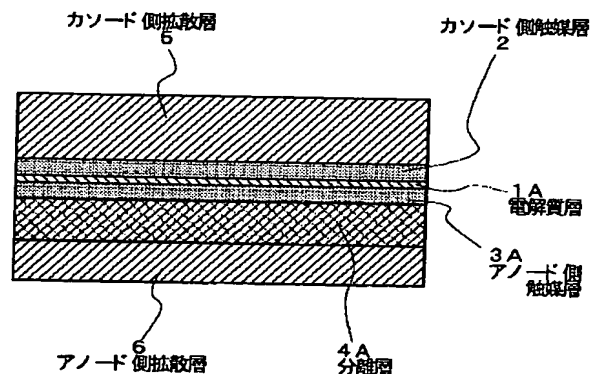
【符号の説明】

- 1 電解質層
- 1A 電解質層
- 2 カソード側触媒層
- 3 アノード側触媒層
- 3A アノード側触媒層
- 4 分離層
- 4A 分離層
- 4B 分離層
- 4C 分離層
- 5 カソード側拡散層
- 6 アノード側拡散層

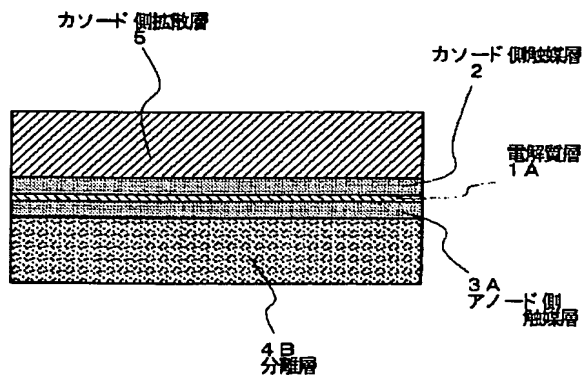
【図1】



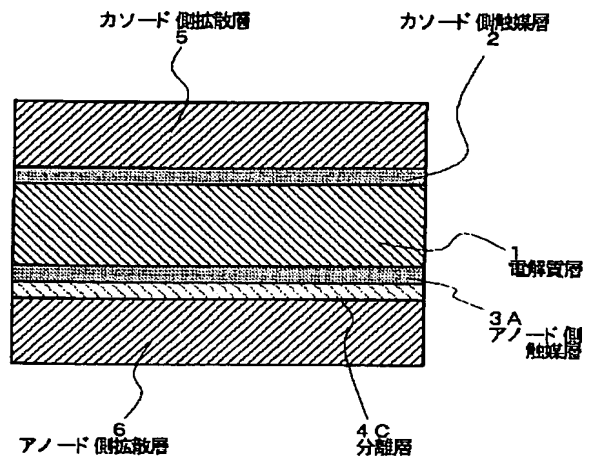
【図2】



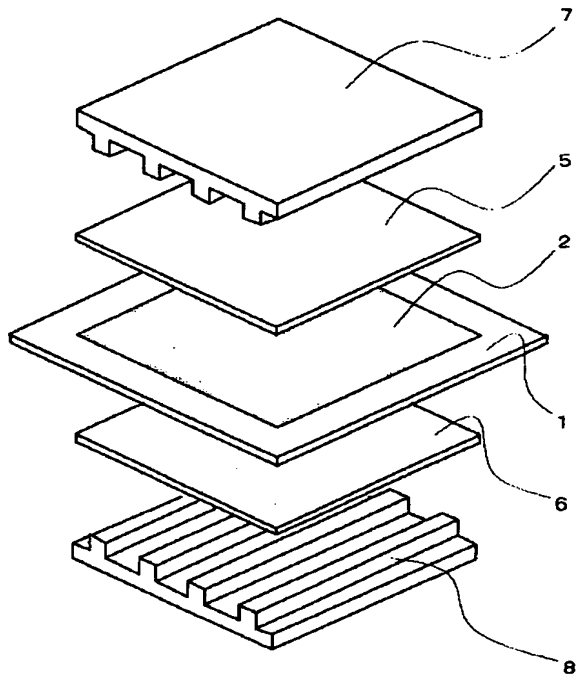
【図3】



【図4】



【図5】



【図6】

